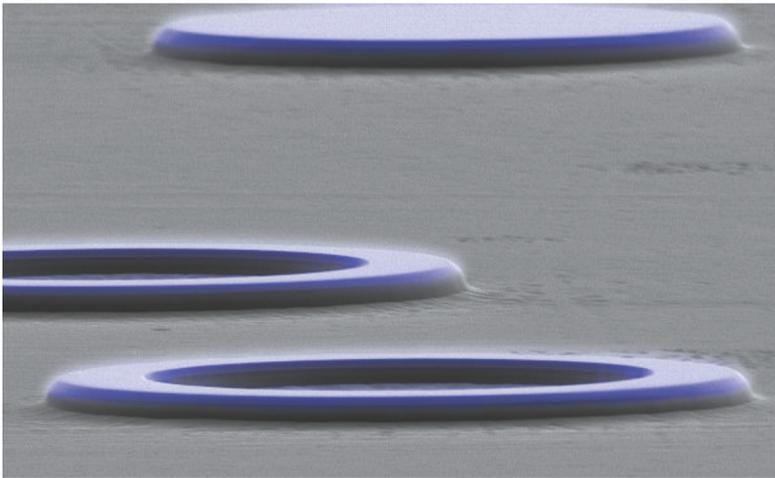


Frequenzkonversion mittels
chipintegrierter
Flüstergalerieresonatoren
aus Lithiumniobat



Richard Wolf

Frequenzkonversion mittels chipintegrierter Flüstergalerieresonatoren aus Lithiumniobat



Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
der Technischen Fakultät der Albert-Ludwigs-Universität
Freiburg im Breisgau

vorgelegt von
Richard Wolf

aus Donaueschingen

August 2018

Selbstständigkeitserklärung

Ich erkläre hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- oder Beratungsdiensten (Promotionsberaterinnen oder Promotionsberater oder anderer Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen. Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Richard Wolf,
Freiburg, 02. August 2018

Dekan:	Prof. Dr. Oliver Paul
Gutachter:	Prof. Dr. Karsten Buse Prof. Dr. Hans Zappe
Beisitzer	Prof. Dr. Ulrike Wallrabe Prof. Dr. Oliver Ambacher

Datum der Promotion: 18.09.2018

Bibliographische Information der Deutschen Nationalbibliothek:
Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen
Nationalbibliographie; detaillierte bibliographische Daten sind im Internet über
www.dnb.de abrufbar.

©2018 Richard Wolf

Herstellung und Verlag:

BoD - [Books on Demand](http://www.bod.de), Nordersted

ISBN 9783748194804

INHALTSVERZEICHNIS

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	7
2.1	Wellenleiterkonzepte	7
2.2	Flüstergalerieresonatoren	10
2.2.1	Geometrie und Feldverteilung	10
2.2.2	Kopplung und Güte	12
2.3	Nichtlinear-optische Frequenzkonversion	15
2.3.1	Frequenzverdopplung	16
2.3.2	Optisch parametrische Oszillation	22
2.3.3	Raman-Streuung	24
3	Herstellung chipintegrierter Flüstergalerieresonatoren	27
3.1	Systemdesign	27
3.2	Prozessübersicht	33
3.3	Dünnschichtsubstrate	35
3.3.1	Lithiumniobat auf Isolator	35
3.3.2	Periodisch gepoltes Lithiumniobat auf Quarz	36
3.4	Chrom-Maskenherstellung mit Umkehrlacken	50
3.4.1	Methoden	51
3.4.2	Ergebnisse	51
3.4.3	Diskussion	53

3.5	Reaktives Ionen-Ätzen von Lithiumniobat	54
3.5.1	Methoden	55
3.5.2	Ergebnisse	56
3.5.3	Diskussion	59
4	Koppelkonzepte und Streuverlustminimierung	61
4.1	Koppelkonzepte	61
4.2	Optischer Aufbau	64
4.2.1	Kopplungs- und Gütemessung	64
4.2.2	Einfluss von Temperaturänderungen	67
4.2.3	Miniaturisierung des Gesamtaufbaus	69
4.3	Minimierung der Streuverluste	72
4.3.1	Methoden zur Seitenwandpolitur	72
4.3.2	Ergebnisse	74
4.3.3	Diskussion	77
5	Frequenzkonversion	83
5.1	Optischer Versuchsaufbau	83
5.2	Eindomänige Flüstergalerieresonatoren	85
5.2.1	Frequenzverdopplung	85
5.2.2	Kaskadierte nichtlinear-optische Prozesse	86
5.2.3	Diskussion	88
5.3	Periodisch gepolte Flüstergalerieresonatoren	93
5.3.1	Quasiphasenangepasste Frequenzverdopplung	94
5.3.2	Ergebnisse	95
5.3.3	Diskussion	96
6	Zusammenfassung	101
	Anhang	117
	Formelzeichen	117
	Eigene Veröffentlichungen	129

KAPITEL 1

EINLEITUNG

Laserlichtquellen haben seit ihrer ersten Demonstration im Jahr 1960 durch Maiman [1] optische Technologien revolutioniert. Der Grund für den beispiellosen Siegeszug des Laserlichts ist dessen große zeitliche und räumliche Kohärenz, was zu einer sehr guten Fokussierbarkeit und damit hohen Intensitäten führt [2]. Laser sind zudem extrem schmalbandige Lichtquellen, deren Emissionswellenlänge durch Energieübergänge im Lasermedium definiert ist. Dieser Vorteil ist jedoch auch eine große Einschränkung, da die Emissionswellenlänge bei Lasern oft nur in sehr kleinen Bereichen durchgestimmt werden kann. Bereits kurze Zeit nach der Realisierung des ersten Lasers zeichnete sich eine Möglichkeit ab, diese fundamentale Einschränkung aufzuheben: nichtlinear-optische Frequenzkonversion [3]. Hierbei wird die Nichtlinearität der Polarisierung bei der Licht-Materie-Wechselwirkung ausgenutzt. Mit Hilfe der Frequenzverdopplung oder Summenfrequenzzeugung lässt sich so Licht zum Beispiel vom infraroten in den sichtbaren Bereich konvertieren, in dem bessere Detektoren zur Verfügung stehen [4], oder mittels der optisch parametrischen Oszillation (OPO) können Lichtquellen realisiert werden, welche über einen weiten Frequenzbereich durchstimmbare sind, was zum Beispiel für spektroskopische Anwendungen von Interesse ist [5, 6].

Die für die nichtlineare Optik notwendigen hohen Intensitäten können durch Resonatoren erreicht werden. In bereits kommerziell existierenden Frequenzkonvertern kommen Spiegelresonatoren zum Einsatz [7, 8]. Diese sind jedoch komplex und groß, und dielektrische Beschichtungen der Spiegel limitieren deren Einsatzbereich. Im vergangenen Jahrzehnt wurde daher intensiv an einer kompakten und monolithischen Resonatorform geforscht: den Flüstergalerieresonatoren (FGR) [9–11]. Hier wird Licht durch interne Totalreflektion entlang des Äquators der rotationssymmetrischen FGR geleitet. Ein Vorteil im Vergleich mit den Spiegelresonatoren ist somit, dass der Einsatzbereich allein durch den Transparenzbereich des verwendeten Materials limitiert ist. Zudem sind diese Resonatoren kompakt, monolithisch stabil, und es werden sehr

hohe Güten erreicht, was zu großen internen Leistungsüberhöhungen führt.

Optische FGR wurden zuerst als millimetergroße Volumenkristall-FGR realisiert. Diese werden in einem seriellen Herstellungsprozess auf einer Drehbank mit Diamantmessern [12] oder Femtosekunden-Laser-Bearbeitung [13] geformt und anschließend händisch poliert, wodurch Güten bis zu 10^{11} erreicht werden. In den vergangenen Jahren entwickelte sich großes Interesse, FGR mit mikrosystemtechnischen Methoden in Chips zu integrieren. Chipintegrierte FGR (iFGR) versprechen vier wesentliche Vorteile: (1) Reproduzierbare Herstellung von sehr kleinen iFGR mit Radien im 10- μm -Bereich. (2) Parallele und daher bis zur Massenfertigung skalierbare Herstellungsprozesse. (3) Integration des Pumplasers, des Frequenzkonverters und der Detektoren auf nur einem Chip in photonischen Schaltkreisen (PIC: engl. photonic integrated circuits). (4) Einfache Integration weiterer Elemente, wie Heizer, Temperatursensoren oder Elektroden zur Regelung, bzw. zum Durchstimmen der Resonanzfrequenzen der iFGR [14]. Voraussetzung für PIC mit hoher Integrationsdichte ist die Verfügbarkeit von Dünnschichtsubstraten. Nur so können Stegwellenleiter mit hohen Brechungsindexunterschieden zwischen Wellenleiterkern und Umgebung hergestellt werden, was eine starke Lichtleitung und daher gekrümmte Wellenleiter, bzw. iFGR mit kleinen Radien möglich macht. Problematisch bei iFGR sind die herstellungsbedingt rauen Seitenwände der Stegwellenleiter, was zu hohen Streuverlusten und somit geringen Güten führt.

Neben der Resonatorform ist das verwendete Material zur Realisierung von Frequenzkonvertern entscheidend. Zentrosymmetrische oder polykristalline Materialien weisen nur nichtlineare Koeffizienten ungerader Ordnung auf, wodurch beispielsweise 4-Wellenmischung möglich ist. Diese wurde zuerst 2004 in iFGR aus polykristallinem Siliziumdioxid realisiert [15] ([Abb. 1.1 \(a\)](#)). Kurze Zeit später wurde über kaskadierte 4-Wellenmischung der erste chipintegrierte Frequenzkamm demonstriert [16]. Nicht-zentrosymmetrische Materialien hingegen zeigen einen nichtlinearen Koeffizienten zweiter Ordnung, was 3-Wellenmischung, wie Frequenzverdopplung oder optisch parametrische Generation ermöglicht. Ein weit verbreitetes, nicht-zentrosymmetrisches Material ist Lithiumniobat aufgrund seinen großen nichtlinear-optischen Koeffizienten und dessen großen Transparenzbereichs. So wurde in Volumenkristall-FGR aus Lithiumniobat unter anderem Frequenzverdopplung mit Konversionseffizienzen bis zu 50 % [17], Summenfrequenzzeugung [18] und OPO gezeigt ([Abb. 1.1 \(b\)](#)) [19,20]. Hierbei lässt sich mittlerweile Licht vom ultravioletten bis hin zum infraroten Bereich erzeugen [21–26]. Zur Phasenanpassung wurde sowohl die Doppelbrechung als auch Quasiphasenanpassung durch Domänenmuster genutzt. Quasiphasenanpassung bietet eine größere Flexibilität in Bezug auf Wellenlänge und Polarisation der interagierenden Wellen [27].

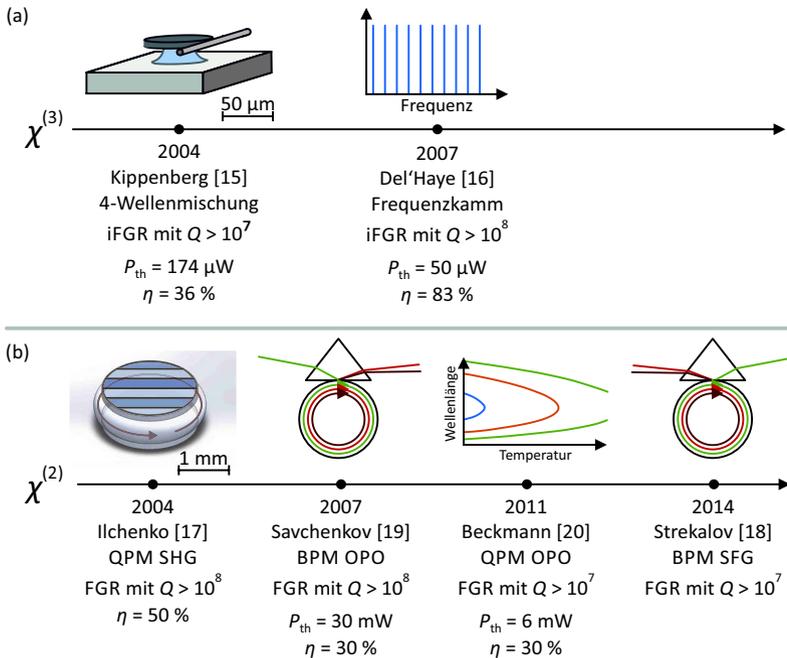


Abbildung 1.1: Zeitliche Entwicklung FGR-basierter Frequenzkonverter für zentrosymmetrische, bzw. polykristalline Materialien (a) und das nicht-zentrosymmetrische, kristalline Materialien Lithiumniobat (b). Frequenzkonverter basierend auf dem nichtlinearen Koeffizienten 3. Ordnung ($\chi^{(3)}$) lassen sich chipintegriert herstellen, da durch thermisches Nachbehandeln Güten größer 10^7 erreicht werden können. Für Frequenzkonverter basierend auf den nichtlinearen Koeffizienten 2. Ordnung ist dies nicht der Fall, da diese einkristallin sein müssen. Diese existieren daher nur in Form von Volumenkristall-FGR, da hier iFGR zu geringe Güten aufweisen. Es wurde so Frequenzverdopplung (SHG), optisch parametrische Oszillation (OPO) und Summenfrequenzerzeugung (SFG) gezeigt, wobei Doppelbrechungsphasenanpassung (BPM) und Quasiphasenanpassung (QPM) genutzt wurden. Die Schwellenleistung P_{th} bezeichnet die Leistung des eingekoppelten Lichtes, ab der der OPO-Prozess anschwingt und η die Effizienz des Konversionsprozesses.

Bei der zeitlichen Weiterentwicklung FGR-basierter Frequenzkonverter fällt auf, dass 3-Wellenmischung bisher noch nicht in den sehr vielversprechenden iFGR möglich ist (Abb. 1.1). Hierfür gibt es zwei Gründe: Zum einen sind aufgrund von Anwendungen in der Mikroelektronik und Mikromechanik Dünnschichtsubstrate aus polykristallinem Siliziumdioxid (SOI, engl.: silicon on insulator) und Siliziumnitrid seit längerer

Zeit in guter Qualität kommerziell verfügbar. Es ist daher nicht verwunderlich, dass die Entwicklung von PIC aus diesen Materialien bereits in den 80er-Jahren [28] begann und beispielsweise im Bereich von Telekommunikationsanwendungen sehr weit fortgeschritten ist [29–32]. Hier werden iFGR unter anderem zur Realisierung von schmalbandigen Filtern verwendet. Zum anderen lassen sich bei iFGR aus polykristallinen Materialien durch kurzes Aufschmelzen der Oberflächen die Streuverluste reduzieren, wodurch Güten größer 10^8 möglich werden.

Einkristalline iFGR aus Lithiumniobat wurden hingegen erst kürzlich durch die Verfügbarkeit von Lithiumniobat-Dünnschichtsubstraten möglich [33]. Hier befindet sich ein Lithiumniobat-Dünnschicht auf einer Siliziumdioxid-Schicht, wodurch Stegwellenleiter mit hohen Brechungsindexunterschieden und daher starker Lichtleitung realisiert werden können. Ein wesentliches Problem bei einkristallinen iFGR ist jedoch, dass ein thermisches Nachbehandeln zur Oberflächenrauheitsreduzierung nicht möglich ist, da ein Aufschmelzen zu polykristallinem Material führen würde. Da sich Lithiumniobat zudem schwer strukturieren lässt, was zu starken Seitenwandrauheiten führt, sind die Güten dieser iFGR daher im Vergleich zu denen von Volumenkristall-FGR oder polykristallinen iFGR klein und liegen im Bereich 10^3 bis 10^4 [34, 35]. Dies führt zu geringen Leistungsüberhöhungen und somit zu geringen Konversionseffizienzen und hohen Pumpschwellen für die OPO. Zudem sind bisher nur eindomänige Dünnschichtsubstrate kommerziell erhältlich, wodurch einzig Doppelbrechungsphasenanpassung und keine Quasiphasenanpassung möglich ist. Doppelbrechungsphasenanpassung ist jedoch nur für bestimmte Wellenlängen der interagierenden Wellen möglich, so dass nur ein Teil des Transparenzbereichs des Materials genutzt werden kann. Nachträgliches Einbringen von Domänenmustern in diese Dünnschichten gestaltet sich als schwierig. Üblicherweise lässt sich Lithiumniobat durch Anlegen externer Felder entlang der z-Kristallachse umpolen [36]. Dies ist bei den Dünnschichtsubstraten im z-Schnitt jedoch unmöglich, da die vergrabene Seite des Dünnschichtfilms nicht mehr elektrisch kontaktiert werden kann [33].

Zu Beginn dieser Arbeit existierten daher nur eindomänige Lithiumniobat iFGR, deren Resonanzfrequenz elektrooptisch durchgestimmt werden konnte, jedoch noch keine Frequenzkonverter, da die Güten hierzu nicht ausreichen. Sehr früh und parallel zu dieser Arbeit konnte doppelbrechungsphasenangepasste Frequenzverdopplung von Wang et al. gezeigt werden [37]. Hier gelang es, Resonatoren mit Güten von $1,02 \times 10^5$ herzustellen, die maximale Leistung des konvertierten Lichts ist mit 7,3 nW jedoch noch sehr gering.

Es wird deutlich, dass iFGR ein großes Potential bieten, kompakte, günstige und weit durchstimmbare kohärente Lichtquellen zu realisieren. Dieses Potential konnte jedoch aufgrund der geringen Güten und der Beschränkung auf die Doppelbrechungsphasenanpassung nicht genutzt werden. Somit besteht in diesen Punkten noch erheblicher Forschungsbedarf. Ziel dieser Arbeit ist es, effizientere und flexiblere iFGR-

Frequenzkonverter möglich zu machen. Dazu tragen drei wesentliche Punkte dieser Arbeit bei: Erstens wird an einem Politurverfahren zur Güteverbesserung gearbeitet, um auch bei einkristallinen iFGR Güten im Bereich der polykristallinen iFGR, bzw. der Volumenkristall-FGR erreichen zu können. Wichtig bei diesem Verfahren ist, dass es parallel und nicht seriell ist, um den Vorteil der skalierbaren Herstellung der iFGR im Vergleich zu den Volumenkristall-FGR nicht zunichte zumachen. Ein zweiter Punkt ist die Entwicklung von domänenstrukturierten Dünnsfilmsubstraten aus Lithiumniobat um Quasiphasenanpassung möglich zu machen. Drittens soll ein Kopplungskonzept entwickelt werden, bei dem die Kopplung von Licht in den iFGR eingestellt werden kann. Dies wird erreicht, indem zwei separate Chips verwendet werden. Auf einem Chip befinden sich die iFGR. Mit einem zweiten Chip mit Koppelwellenleitern wird von oben in die iFGR Licht eingekoppelt, wobei über den Abstand der Chips die Kopplung eingestellt werden kann. Dieser Freiheitsgrad ist wichtig, um die Güte der iFGR bestimmen zu können oder um die Effizienz der Frequenzkonversionsprozesse einstellen zu können. Es werden in dieser Arbeit stimulierte RAMAN-Streuung und unterschiedliche Frequenzverdopplungsprozesse in eindomänigen und domänenstrukturierten iFGR untersucht und diese beiden Resonatorarten miteinander verglichen.

Im folgenden [Kapitel 2](#) werden unterschiedliche Wellenleiterkonzepte in Lithiumniobat vorgestellt und die Grundlagen zu iFGRs und relevanten nichtlinear-optischen Frequenzkonversionsprozessen erläutert. Im Anschluss, in [Kapitel 3](#) werden zuerst durch Simulationen wichtige Geometrieparameter wie die Breite und Höhe der Wellenleiter, der iFGR-Radius und die Periodenlänge der Domänenstruktur festgelegt. Anschließend wird auf die Herstellung der Dünnsfilmsubstrate und die Strukturierung von Wellenleitern in diese Substrate näher eingegangen. Im [Kapitel 4](#) wird im ersten Teil das in dieser Arbeit entwickelte Koppelkonzept vorgestellt. Im zweiten Teil wird das Politurverfahren zur Güteverbesserung gezeigt und mit parallel zu dieser Arbeit entstandenen Werken verglichen. Im [Kapitel 5](#) werden mit eindomänigen iFGR kaskadierte nichtlinear-optische Effekte wie RAMAN-Streuung mit Frequenzverdopplung und Summenfrequenzerzeugung gezeigt. Phasenanpassung findet hier über die Doppelbrechung und die Brechungsindexabhängigkeit der Modenordnung statt. Im zweiten Teil wird zum ersten Mal in iFGR quasi-phasenangepasste Frequenzverdopplung demonstriert. Hierbei kommen selbst hergestellte periodisch gepolte Dünnsfilmsubstrate zum Einsatz. Es werden beide Resonatortypen miteinander verglichen und es wird diskutiert, was noch nötig wäre, um auch optisch parametrische Oszillation in iFGR realisieren zu können.

KAPITEL 2

GRUNDLAGEN

Dieses Kapitel beschreibt die Grundlagen für die Realisierung chipintegrierter Frequenzkonverter in Lithiumniobat. Zuerst muss Licht auf einem Chip mit Hilfe von Wellenleitern geleitet werden können. Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden daher kurz die Grundlagen zu chipintegrierten Wellenleitern ausgeführt. Zur Frequenzkonversion sollen Resonatoren verwendet werden, um möglichst hohe Intensitäten auf dem Chip zu erreichen. Die Grundlagen zu den hierzu verwendeten chipintegrierten Flüstergalerieresonatoren (iFGR) werden im zweiten Abschnitt dieses Kapitels erklärt. Der letzte Kapitelabschnitt beschreibt die Theorie zu den nichtlinear-optischen Frequenzkonversionsprozessen.

2.1 Wellenleiterkonzepte

Damit Licht in einem Chip geleitet werden kann, ist eine Wellenleiterstruktur mit einem Wellenleiterkern nötig, der einen höheren Brechungsindex als dessen Umgebung aufweist. Durch den höheren Brechungsindex des Wellenleiterkerns wird Licht an dessen Seitenwänden durch interne Totalreflexion immer wieder ins Wellenleiterinnere reflektiert. Das Licht ist somit im Wellenleiterkern gefangen und kann in sehr schmalen Bahnen oder auch gekrümmten Strukturen über weite Distanzen in einem Chip geleitet werden.

Um Lichtleitung zu erreichen, müssen somit Kanäle mit hohem Brechungsindex im Vergleich mit dem vom Substrat erzeugt werden. Hierzu gibt es unterschiedliche Ansätze, wovon drei hier kurz dargestellt und deren Vor- und Nachteile beschrieben werden. Eine sehr verbreitete Methode ist, Kanäle mit leicht erhöhtem Brechungsindex durch Diffusionsprozesse zu erzielen ([Abb. 2.1 \(a\)](#)). Bei Wellenleitern aus Lithiumniobat lässt sich der Brechungsindex mit geringem technologischen Aufwand beispielsweise durch Ausdiffundieren von Lithiumoxid, Eindiffundieren von Metallen,